



Study of the Electronic State in the Overdoped Regime of Electron-doped High-Tc Cuprates

著者	MALIK ANJELH BAQIYA
号	60
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第5150号
URL	http://hdl.handle.net/10097/00120481

氏 名	マリク アンジェフ バキヤ
授 与 学 位	Malik Anjelh Baqiya 博士（工学）
学 位 授 与 年 月 日	平成27年9月25日
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学位規則第4条第1項
研究科，専攻の名称	東北大学大学院工学研究科（博士課程）応用物理学 専攻
学 位 論 文 題 目	Study of the Electronic State in the Overdoped Regime of Electron-doped High- T_c Cuprates (電子ドーピング型銅酸化物高温超伝導体のオーバードープ領域における電子状態の研究)
指 導 教 員	東北大学教授 小池 洋二
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 小池 洋二 東北大学教授 佐久間 昭正 東北大学教授 宮崎 譲 東北大学准教授 土浦 宏紀 准教授 足立 匡 (上智大学)

論 文 内 容 要 旨

Introduction

The mechanism of the superconductivity, namely, the mechanism of the electron pairing in the high- T_c superconducting cuprates has extensively been studied. In the hole-doped high- T_c cuprates, it is well known that the doping of holes into the antiferromagnetic (AF) Mott-insulating state in the parent compounds destroys the AF order so that the superconductivity appears, suggesting that the AF spin correlation is related to the electron pairing. Moreover, in the overdoped regime where T_c decreases with hole doping, the so-called electronic inhomogeneity, that is, a phase separation into superconducting (SC) and normal-state regions, and/or the weakening of the AF spin correlation has been suggested to be related to the decrease in T_c with doping.

In the electron-doped high- T_c cuprates with the so-called T'-structure, formerly, it has been suggested that through the sufficient removal of excess oxygen, the parent compounds are not Mott-insulating but SC, indicating that the pairing mechanism may not be related to the AF spin correlation. Recent studies of the SC parent compounds and the electron-underdoped T'-cuprates have proposed that the superconductivity is able to be understood in terms of the band picture with the strong electron correlation. That is, it has been suggested that the short-range magnetic order coexists with the superconductivity in both the parent compounds and the electron-underdoped T'-cuprates. Furthermore, in the underdoped regime of T'-cuprates, it has been found that the Hall resistivity is nonlinear with magnetic field, suggesting the coexistence of both hole and electron carriers. These results have proposed that the electron pairing is mediated by the AF spin correlation. However, neither the electronic state nor the pairing mechanism has yet been clear in the overdoped T'-cuprates. Moreover, it has not yet been clear whether or not the decrease in T_c in the overdoped T'-cuprates is related to the inhomogeneous electronic state.

In order to elucidate the mechanism of the superconductivity in the electron-doped T'-cuprates, I have investigated both SC and normal electronic states in the overdoped T'-cuprates of $\text{Pr}_{1-x}\text{LaCe}_x\text{CuO}_4$ (PLCCO), where electrons are doped through the substitution of Ce for Pr. Concretely, I have focused on whether the SC electronic state is inhomogeneous or not and on the normal-state properties and the possible band picture in the overdoped PLCCO.

Experimental

Single crystals of PLCCO with $x = 0.13, 0.15, 0.17, 0.20$ were grown by the travelling-solvent floating-zone method. The quality of the grown crystals was checked by the powder x-ray diffraction and the x-ray back-Laue photography to be good. The reduction annealing necessary to obtain the superconductivity in the T'-cuprates was

carried out by the protected vacuum annealing technique. Magnetization measurements were performed in magnetic fields parallel to the c-axis up to 9 T using a SC quantum interference device (SQUID) magnetometer (Quantum Design, MPMS). Specific-heat and electrical-resistivity measurements in magnetic fields parallel to the c-axis up to 9 T were carried out using a commercial apparatus (Quantum Design, PPMS). Hall-resistivity measurements were carried out in magnetic fields parallel to c-axis up to 17.5 T at High Field Laboratory for Superconducting Material, Tohoku University. The muon-spin-relaxation (μ SR) experiments were performed at the RIKEN-RAL Muon Facility at the Rutherford-Appleton Laboratory in the United Kingdom using a pulsed positive surface muon beam.

Results and discussion

Figure 1 shows the magnetic-field dependence of the magnetization curve for reduced crystals of PLCCO with $x = 0.13, 0.15, 0.17$. It has been found that, compared with the overdoped LSCO with $x = 0.198$ (Y. Tanabe *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 113706 (2007)), the hysteresis is quite small and that the so-called second magnetization peak is not observed in PLCCO, suggesting that the vortex pinning is relatively weak due to the rather homogeneous electronic state. In addition, the specific-heat measurements have revealed that the magnetic field, H , dependence of the residual Sommerfeld constant in the ground state, $\Delta\gamma_0 = \gamma_0(H) - \gamma_0(0)$, is well reproduced by $H \ln H$ rather than $H^{1/2}$, suggesting the occurrence of homogeneous dirty d -wave superconductivity. These results indicate that the SC electronic state is homogeneous in the overdoped T'-cuprates.

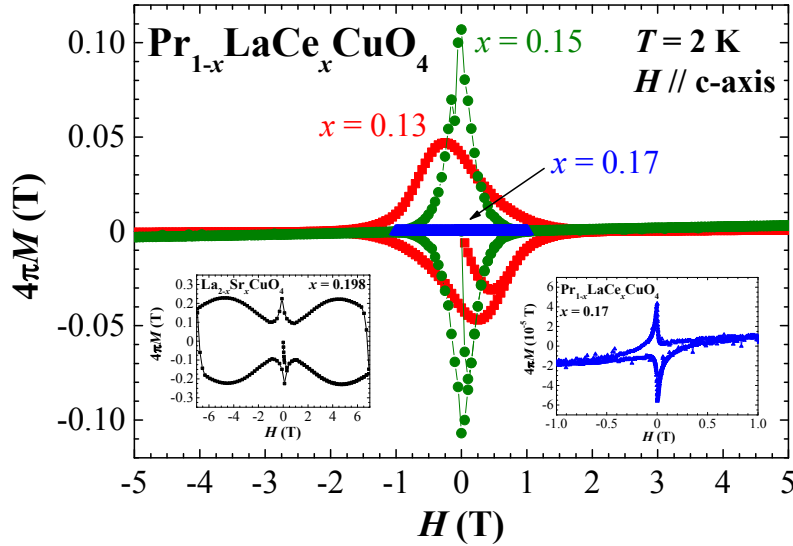


Figure 1. Magnetization curve for $\text{Pr}_{1-x}\text{LaCe}_x\text{CuO}_4$ with $x = 0.13 - 0.17$. The magnetization curve for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ with $x = 0.198$ is also shown for comparison (Y. Tanabe *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 113706 (2007)).

Figure 2 shows the magnetic-field dependence of the Hall resistivity, ρ_{xy} , for both $\text{Pr}_{1.3-x}\text{La}_{0.7}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ with $x = 0.10$ and PLCCO with $x = 0.20$ single crystals. It is found that, while ρ_{xy} is negative and exhibits a nonlinear magnetic-field dependence in $x = 0.10$ (T. Konno, Master Thesis (2015)), ρ_{xy} in the overdoped regime of $x = 0.20$ where the superconductivity almost disappears is positive and exhibits a linear magnetic-field dependence, indicating the existence of one kind of hole carriers in $x = 0.20$. Figure 3 displays the μ SR time spectra of PLCCO with $x = 0.14$ (polycrystal) (Risidiana *et al.*, Phys. Rev. B **82**, 014506 (2010)), 0.17, 0.20 (single crystals) in zero field. The recovery of the asymmetry in the long-time region with decreasing temperature at low temperatures as shown in $x = 0.14$ corresponds to the development of the Cu-spin correlation. It is found that the development of the spin correlation weakens with increasing x and is negligibly small for $x = 0.20$. These results suggest that the AF spin correlation exists in the T'-cuprates where the superconductivity appears and moreover that the electron doping results in the change of multiple to single carriers and in the weakening of the AF spin correlation, which is the reason for the decrease in T_c in the overdoped T'-cuprates.

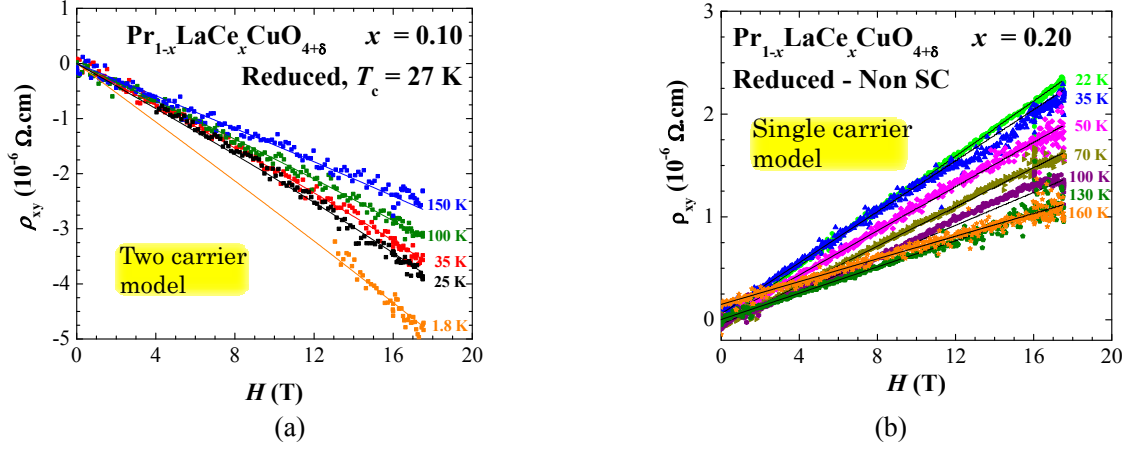


Figure 2. Magnetic-field dependence of the Hall resistivity, ρ_{xy} , in (a) the superconducting crystal of $\text{T}'\text{-Pr}_{1-x}\text{LaCe}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ with $x = 0.10$ (T. Konno, Master Thesis (2015)), and (b) the non-superconducting crystal of PLCCO with $x = 0.20$ (present data). The carrier changes from multiple in the underdoped regime to single in the overdoped regime of T' -cuprates.

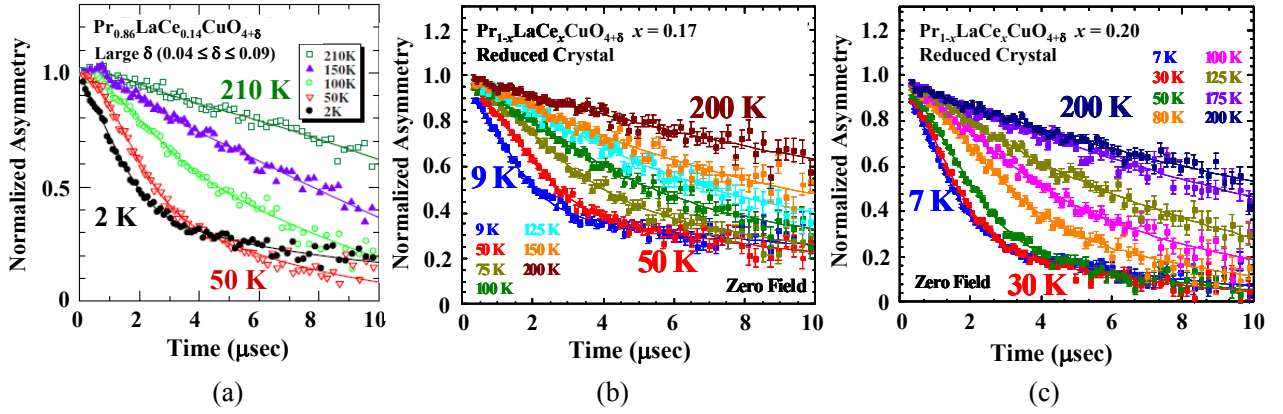


Figure 3. μSR time spectra of PLCCO with $x = 0.14$ (Risidiana *et al.*, Phys. Rev. B **82**, 014506 (2010)), 0.17, 0.20 (present data) in zero field. The recovery of the asymmetry in the long-time region with decreasing temperature at low temperatures indicates the development of Cu-spin correlation. It is shown that the development of the spin correlation weakens with increasing x .

Conclusions

The magnetization and specific-heat measurements have revealed that a rather homogeneous SC electronic state is realized in the overdoped T' -cuprates. The μSR and Hall resistivity measurements have uncovered that the AF spin correlation exists in the T' -cuprates where the superconductivity appears and that the carriers change from multiple to single with electron doping in the overdoped T' -cuprates. The μSR measurements have revealed that the AF spin correlation exists in the superconducting region even without the AF order in the phase diagram and that the development of the spin correlation weakens with increasing x . These results support the band picture with the strong electron correlation. It has been concluded that the AF spin correlation is related to the electron pairing in the overdoped T' -cuprates as well as in the parent compounds and underdoped T' -cuprates. Accordingly, it is suggested that the mechanism of the superconductivity is related to the AF spin correlation in the electron-doped high- T_c cuprates as well as in the hole-doped ones.

論文審査結果の要旨

銅酸化物における高温超伝導の発現機構、すなわち、電子対の形成のメカニズムは精力的に研究されてきた。その結果、ホールドーピング型銅酸化物超伝導体では、母物質が反強磁性絶縁体であることから、反強磁性的なスピン相関が電子対の形成に寄与していると提案されている。さらに、ホールドーピング量の増加とともに超伝導転移温度 T_c が低下する過剰ドーピング領域では、電子状態の不均一性、あるいは、反強磁性スピン相関の衰弱が T_c 低下の原因であると考えられている。一方、所謂 T' 構造を有する電子ドーピング型銅酸化物超伝導体では、以前、母物質は発見当初考えられていた反強磁性絶縁体ではなく、実は超伝導体であると報告された。そして、T' 構造を有する銅酸化物超伝導体の母物質と電子ドーピング量の少ない所謂不足ドーピング領域における最近の研究から、超伝導が強い電子相関を考慮したバンド描像、すなわち、反強磁性スピン相関を媒介とした電子対の形成で理解できると提案されている。しかし、電子ドーピング量の多い過剰ドーピング領域における電子状態や電子対の形成のメカニズムは明らかではない。さらに、電子過剰ドーピング領域における T_c 低下の原因についても明らかではない。そこで、本研究では、T' 構造の銅酸化物における超伝導の発現機構を明らかにするために、Pr を Ce で置換することで電子キャリアがドーピングされる T' 構造の銅酸化物 $\text{Pr}_{1-x}\text{LaCe}_x\text{CuO}_4$ の電子過剰ドーピング領域において、超伝導状態と常伝導状態における電子状態を調べた。その結果、磁化と比熱の測定から、T' 構造の銅酸化物の過剰ドーピング領域ではかなり均一な超伝導状態が実現していることが明らかになった。また、超伝導が発現する T' 構造の銅酸化物においては、反強磁性スピン相関が存在し、電子ドーピング量の増加とともに、キャリアの種類が複数から 1 種類に移り変わり、さらに、反強磁性スピン相関が衰弱することが明らかになった。これらの結果は、強い電子相関を考慮したバンド描像を支持するものである。結局、T' 構造の銅酸化物の母物質と不足ドーピング領域と同様に、過剰ドーピング領域においても、反強磁性スピン相関が電子対の形成の関わっている可能性が高く、銅酸化物における高温超伝導の発現機構は電子ドーピング型もホールドーピング型も変わらないと結論している。本論文は、これらの研究成果についてまとめたもので、全編 4 章からなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景と目的を述べている。

第 2 章では、試料の作製の方法とその評価方法、および、物性の実験方法について述べている。

第 3 章では、実験結果と考察を述べている。まず、磁化曲線の測定では、不均一な電子状態に特徴的な所謂第 2 ピークは観測されなかった。また、比熱の測定では、均一な超伝導状態に不純物が含まれている場合に特徴的な残留電子比熱係数の磁場依存性が観測された。これらのことから、T' 構造の銅酸化物の過剰ドーピング領域では、かなり均一な超伝導状態が実現していると結論している。また、ホール抵抗率を測定し、不足ドーピング領域では磁場に対して非線形な振る舞いを示すが、超伝導がほとんど消失している過剰ドーピング領域では磁場に比例することがわかった。前者はキャリアの種類が複数あること、後者はキャリアの種類が 1 種類であることを示唆している。さらに、ミュオンスピン緩和の測定から、スピン相関の発達に電子ドーピング量の増加とともに弱まり、超伝導がほとんど消失している過剰ドーピング領域ではスピン相関の発達が極めて弱いことがわかった。これらの結果は、反強磁性スピン相関は超伝導が発現する T' 構造の銅酸化物で存在し、また、電子ドーピング量の増加によって、キャリアの種類が複数から 1 種類に移り変わり、反強磁性スピン相関は衰弱することを示している。このことが、過剰ドーピング領域における T_c の低下の原因である可能性が高いと述べている。

第 4 章は総括である。本研究の結論と今後の課題について述べている。

以上、要するに本論文は、T' 構造の銅酸化物の電子過剰ドーピング領域において、強い電子相関を考慮したバンド描像で電子状態を理解できることを示し、また、T' 構造の銅酸化物の母物質や不足ドーピング領域と同様に、電子過剰ドーピング領域でも反強磁性スピン相関が電子対の形成に関わっている可能性が高く、銅酸化物における高温超伝導の発現機構は電子ドーピング型もホールドーピング型も変わらないと結論している。これは、電子ドーピング型とホールドーピング型の銅酸化物における高温超伝導の発現機構を統一的理解することに成功したものであり、応用物理学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。